

16 4.27

のたてて

(部)

PC-9035

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP2004/000013

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C09K3/14, B24D3/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C09K3/14, B24D3/00-3/34

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y ①	JP 59-199513 A (昭和電工株式会社) 1984. 11. 12 特許請求の範囲、2 頁左下欄 2 ~ 5 行、実施例 2 (ファミリーなし)	1-16
Y ②	US 4699687 A (住友電気工業株式会社) 1987. 10. 13 特許請求の範囲、実施例 & JP 62-297203 A	1-16
Y ③	US 6461990 B1 (昭和電工株式会社) 2002. 10. 08 特許請求の範囲、実施例 & JP 2001-19411 A	1-16

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

- 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の 1 以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

31. 03. 2004

国際調査報告の発送日

20. 4. 2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官 (権限のある職員)

藤原 浩子

4V

9155

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名、及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y ④	JP 1-240204/A(住友電気工業株式会社)1989.09.25 特許請求の範囲、2頁右下欄10行～最下行 (ファミリーなし)	1-16
Y ⑦	JP 9-31447/A(電気化学工業株式会社)1997.02.04 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-16
Y ⑧	JP 9-169971 A(昭和電工株式会社)1997.06.30 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	2

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 59-199513

(43)Date of publication of application : 12.11.1984

(51)Int.Cl.

C01B 21/064

(21)Application number : 58-072654

(71)Applicant : SHOWA DENKO KK

(22)Date of filing : 25.04.1983

(72)Inventor : IIZUKA EIICHI
MAKI MASAKAZU

(54) SYNTHESIS OF BORON NITRIDE OF CUBIC SYSTEM

(57)Abstract:

PURPOSE: In synthesizing BN of cubic system from BN of hexagonal system, to improve the yield of BN of cubic system, by using LiMBN₂ (M; alkaline earth metal) as a catalyst and an element of IIIb group as an additional matter.

CONSTITUTION: Powder of BN of hexagonal system is blended with powder of LiMBN₂ (M; alkaline earth metal) crushed in an inert gas atmosphere as a catalyst and powder or foil of an element of IIIb group such as B, Al, Ga, In, or Tl as an additional matter. The blend is kept at about 40W60 kilobar, a stable range of BN of cubic system at about 1,300W1,600° C so that BN of hexagonal system is converted into BN of cubic system.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

PC-9035
ISRで挙げられた文献
計8件
1/8

⑬ 日本国特許庁 (JP)
⑭ 公開特許公報 (A)

① 特許出願公開
昭59—199513

⑤ Int. Cl.³
C 01 B 21/064

識別記号

庁内整理番号
7508—4G

④ 公開 昭和59年(1984)11月12日

発明の数 1
審査請求 未請求

(全 3 頁)

⑤ 立方晶窒化ほう素の合成法

① 特 願 昭58—72654

② 出 願 昭58(1983)4月25日

⑦ 発 明 者 飯塚栄一

塩尻市宗賀1昭和電工株式会社
塩尻研究所内

⑦ 発 明 者 牧昌和

塩尻市宗賀1昭和電工株式会社
塩尻研究所内

⑧ 出 願 人 昭和電工株式会社

東京都港区芝大門1丁目13番9
号

⑨ 代 理 人 弁理士 志賀正武

明 細 書

1. 発明の名称

立方晶窒化ほう素の合成法

2. 特許請求の範囲

六方晶窒化ほう素より立方晶窒化ほう素を合成する方法において、触媒として LiMBN_2 (但し M はアルカリ土類金属) を用い、さらに添加物として周期律表の III b 族元素を六方晶窒化ほう素に対し 5 重量% 以下用いることを特徴とする立方晶窒化ほう素の合成法。

3. 発明の詳細な説明

本発明は、六方晶窒化ほう素から立方晶窒化ほう素を合成する方法に関し、特にその収率をあげることを目的とした立方晶窒化ほう素合成法に関する。

立方晶窒化ほう素 (以下 CBN という) は、ダイヤモンドに近い固さを有し、しかも化学的安定性がダイヤモンドより優れているため、研削材としての需要が増大しつつある。

従来、上記のような CBN の工業的な製造方法としては、六方晶窒化ほう素 (以下 HBN という) の粉末と、触媒粉末とを混合し、これを $1300 \sim 1600^\circ\text{C}$ の高温下で、 $40 \sim 60 \text{ kbar}$ の高圧を加え、HBN を CBN に変換する方法が行なわれている。この方法に使用される触媒としては、アルカリ金属或いはアルカリ土類金属の窒化物、 Ca 、 B_2N_4 、 Li 、 BN_2 等が知られている。このような方法は HBN を触媒融液に溶け込ませ、合成条件下での共晶体への溶解度が HBN より CBN の方が小さいことを利用して CBN を析出させるものである。ところで、研削材としての CBN 粒子は、緻密で透明性がよく、自形粒で圧縮強度の高い良質なものであることが要求される。しかし上記従来の CBN 製造方法においては、必ずしも十分な機械的強度、良好な形状を有する良質な CBN を得ることができるとは限らないのが実情であつた。

本発明者らは先に HBN に混合する触媒として、 LiCaBN_2 、 LiBaBN_2 を用いて良質な

CBNを得る方法を発明した(特願昭56-181391、57-122973参照)。しかし、この方法は良質のCBNが得られるがCBNへの変換率(収率)があまり高くない欠点があった。

本発明者らは上記の事情を考慮して鋭意研究した結果、 $LiMBN_2$ 触媒とともに添加物としてⅢb族元素を用いると、CBNの質が悪くならないで、収率が上がることを発見した。

本発明はこの発見に基づいて完成されたもので、その要旨は六方晶窒化ほう素を合成する方法において、触媒として $LiMBN_2$ (但しMはアルカリ土類金属)を用い、さらに添加物として周期律表のⅢb族元素を六方晶窒化ほう素に対し5重量%以下用いることを特徴とする立方晶窒化ほう素の合成法にある。

以下本発明の方法を説明する。

本発明は、HBNに触媒として $LiMBN_2$ (但しMはアルカリ土類金属)および添加物として周期律表Ⅲb族元素を所定量加えて、CBNの

は50%以上では、良質のCBNが得られない。

また、添加するⅢb族元素は具体的には、B、Al、Ga、In、Tlで、150メッシュ以下の粉末或は箔として使用する。混合割合は、HBNに対し0.1~5重量%がよい。5重量%以上とするとCBNの形状が悪くなり、0.1重量%以下だとCBNの収率上昇の効果が少ない。

上記触媒 $LiMBN_2$ 、添加物Ⅲb族元素を原料HBNに添加するには、次のような方法がある。

- ① HBNを150メッシュ以下の粉末として、これに所定量の $LiMBN_2$ およびⅢb族元素の粉末を添加混合し、この混合した粉末を圧粉成形する。
- ② HBN粉末および $LiMBN_2$ 粉末をそれぞれ圧粉成形して薄板とし、これら薄板とⅢb族元素の箔又は粉末を圧粉した薄板とを所定の比率となるように積層する。

上記触媒および添加物が所定の割合で添加された成形体或は積層体は、ダイヤモンド合成に使用される周知の高圧高温反応器に装填され、所定の

安定域である40~60kbar、1300~1600°Cの条件に保持してHBNをCBNに変換する方法である。

上記 $LiMBN_2$ 中のアルカリ土類金属Mは具体的にはBe、Mg、Ca、Sr、Baで、いずれを用いてもよいが、 $LiCaBN_2$ および $LiBaBN_2$ を合成する原料が入手し易いため主としてこれらを用いている。

上記触媒製法の一例を、 $LiCaBN_2$ を代表として説明する。先ず、原料としてLi、N、Ca、N₂、HBNの粉末を用いる。これらの粉末をモル比でLi、N:Ca、N₂:HBN=1~1.4:1~1.4:3の割合に混合し、約1000°Cに40分程度保持した後冷却して、凝固した $LiCaBN_2$ を得る。これを不活性ガス雰囲気中で150メッシュ以下に粉砕してCBN合成触媒に使用する。

上記触媒 $LiMBN_2$ の使用量は原料HBNに対し($LiMBN_2$ /HBN)、5~50重量%、望ましくは10~30重量%である。5%以下又

条件に保持されてCBNが合成される。

この方法は、Ⅲb族元素を添加しない場合に比して30~60%CBNの生成量があり、CBNの大幅なコストダウンを可能とする方法である。

なお、CBNの合成には、結晶成長の核としてCBN種子を添加することがあるが、当然のことながら、これは本発明に含まれる。この場合、上記種子を上記添加する触媒および添加物で被覆することも可能である。

またⅢb族元素のうちGaは、融点が30°C程度であるので、液体で混合したり薄板に塗布して添加を行うこともある。

次に実施例および比較例により本発明の作用効果を示す。

150メッシュ下のLi、N粉末、Ca、N₂粉末、HBN粉末をモル比で1:1:3の割合で混合し、850°C、N₂雰囲気中で1時間反応させた後冷却し、凝固した生成物をX線によつて解析し、 $LiCaBN_2$ であることを確認して、これを触媒とした。

実施例 1

150メッシュ下のHBN, LiCaBN_2 ,
A ϕ の粉末を重量比で10:1:0.02の割合
で混合し、成形圧 1.5 t/cm^2 で $26 \text{ mm} \phi$
 $\times 32 \text{ mm h}$ の圧粉成形体とした。この圧粉成形体の成
形密度は、 1.7 g/cm^3 であつた。これを、高圧高
温反応器に装填し、圧力: 50 kbar , 温度:
 1450°C の条件で10分間処理しCBNを合
成した。HBNのCBNへの変換率(収率)は
41%であつた。

実施例 2

実施例1のA ϕ の代りに硼素を用い、HBN:
 LiCaBN_2 :B=10:1:0.1とした外
は実施例1と全く同じにしてCBNを合成した。
CBNの収率は41%であつた。

比較例

IIIb族元素を用いないで、HBN: LiCaBN_2 ,
=10:1の重量比で圧粉成形体をつくり、実施
例1と同じ条件でCBNを合成した。その収率は
28%であつた。

なお、実施例、比較例共に生成したCBNは良
質であつた。

出願人 昭和電工株式会社

代理人 弁理士 志賀正

